



Development of High-performance Hot-deformed Nd-Fe-B Permanent Magnets by the Eutectic Grain Boundary Diffusion Process

著者	Lihua LIU
発行年	2018
その他のタイトル	共晶粒界拡散プロセスによる熱間加工ネオジム系永久磁石の高性能化
学位授与大学	筑波大学 (University of Tsukuba)
学位授与年度	2017
報告番号	12102甲第8500号
URL	http://hdl.handle.net/2241/00152766

氏 名	Lihua LIU		
学 位 の 種 類	博 士 (工 学)		
学 位 記 番 号	博 甲 第 8500 号		
学位授与年月日	平成 30年 3月 23日		
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当		
審 査 研 究 科	数理物質科学研究科		
学 位 論 文 題 目	Development of High-performance Hot-deformed Nd-Fe-B Permanent Magnets by the Eutectic Grain Boundary Diffusion Process (共晶粒界拡散プロセスによる熱間加工ネオジム系永久磁石の高性能化)		
主査	筑波大学教授(連係大学院)	Ph.D.	宝野 和博
副査	筑波大学教授(連係大学院)	博士(工学)	三谷 誠司
副査	筑波大学教授(連係大学院)	理学博士	関口 隆史
副査	筑波大学教授	博士(工学)	柳原 英人

論 文 の 要 旨

1982 年に発明された Nd-Fe-B 系永久磁石は、現在でも最強の磁石として様々な電子機器に利用されている。特に近年、電気・ハイブリッド車の普及とともに駆動用モータや発電機の回転子に使用される Nd-Fe-B 系磁石の需要が急増している。これらの用途にはモータ動作温度 (~200°C) でも減磁しない 4~8 %の Dy を添加した (Nd,Dy) -Fe-B 系高保磁力磁石が使われている。しかし、Fe と Dy が反強磁性的結合をするために、Nd の Dy 置換によって磁化及び最大エネルギー積(BH_{\max})が低下するという欠点がある。また、Dy や Tb などの重希土類元素の資源量が限られることから、Dy フリーあるいは省 Dy 高保磁力 Nd-Fe-B 系磁石の開発が強く求められている。これまでの焼結磁石の保磁力の粒径依存性の研究から、Nd-Fe-B 磁石の保磁力は焼結体の主相 ($\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$) の結晶粒径の微細化とともに増加することが知られている。ところが、熱間加工磁石の結晶粒径は焼結磁石の約 20 分の 1 程度であるにも拘わらず、保磁力はその微細な結晶粒径から期待される値よりはるかに低い。これは結晶粒界に沿って形成される粒界相が強磁性で、微細化された結晶粒が比較的強く交換結合していることに原因があるとされている。

このような背景のもと、審査対象論文は、熱間加工磁石に低融点の $\text{Nd}_x\text{M}_{1-x}$ (M=Fe, Co, Al, Ga, Cu, Mn, Zn 等)の共晶合金を結晶粒界に沿って浸透させ (共晶合金粒界拡散法)、粒間の交換結合を弱めることより、熱間加工磁石の高保磁力化の系統的な実験結果を報告している。本論文は全 7 章で構成されており、第 1 章は Nd-Fe-B 系磁石の保磁力に関する過去の文献を引用しつつ、本研究の社会的背景と工学的意義を述べている。第 2 章では本研究で用いた主な実験法の概要を記述し

ている。第 3 章では熱間加工磁石へ種々の共晶合金を浸透させた場合の磁気特性変化と微細構造変化に関する実験結果の報告とその考察が記述されている。様々な 2 元系共晶合金を浸透源として用いた結果、特に Nd-Cu と Nd-Al で注目すべき結果が得られた。Nd₇₀Cu₃₀, Nd₉₀Al₁₀ 合金を浸透させた結果、それぞれ 2.3 T ならびに 2.5 T の保磁力が得られたが、保磁力の温度依存性の観点からは Nd₇₀Cu₃₀ が最も優れていることが分かった。拡散処理後の磁石では、非磁性の粒界相が扁平な磁石粒子に沿って形成され、面に垂直な方向に体積が膨張するために磁化が下がる。また、大量の非磁性合金の浸透により磁石粒子の配向に乱れが生じ、特に Nd₉₀Al₁₀ による浸透では残留磁化が処理前の 1.50 T から 1.25 T までさらに減少した。これら 2 種の共晶合金浸透試料について詳細な微細組織・構造解析を行い、磁気特性の変化を微細構造変化から説明した。Nd₇₀Cu₃₀, Nd₉₀Al₁₀ 合金の粒界浸透により熱間加工磁石の保磁力は飛躍的に向上するが、これに伴い大きな残留磁化の低下が起こる。そこで第 4 章では浸透合金の粒界へのぬれ性を Ga 添加により改善した Nd-Ga-Cu と Nd-Fe-Ga-Cu 合金の浸透処理の結果を報告している。最近の Ga 添加焼結磁石の報告例から、Nd₂Fe₁₄B 主相の副相を形成する余剰合金組成を Nd₆₂Fe₁₄Ga₂₀Cu₄ と見積もり、その合金と比較のために Nd₈₀Cu₁₅Cu₅ 合金を浸透させたところ、Nd-Cu-Cu 合金では保磁力増加に伴い著しい磁化の低下が起こるのに対し、Nd-Fe-Ga-Cu 浸透では保磁力 2.2 T、残留磁化 1.3 T と高保磁力化に対して残留磁化低下を低減できた。従来 Nd-Cu 浸透で残留磁化を維持するためには膨張拘束拡散が必要であったが、この新合金組成を用いると膨張拘束を行わなくても磁化の低下を抑えることができるのが特徴である。第 5 章ではより高保磁力を必要とする場合に対して、Nd-Al, Nd-Cu 共晶合金の Nd の一部を Dy ならびに Tb で置換する重希土類添加共晶浸透を試みた。Nd₆₂Dy₂₀Al₁₈ 3 元共晶合金を浸透させた場合、 $\mu_0 H_c=2.8$ T, $\mu_0 M_r=1.30$ T といった、比較的高い残留磁化を維持しながら、大幅な保磁力向上が可能であり、同等の保磁力を示す 5%Dy 含有焼結磁石よりも高い残留磁化を 1.38% の Dy 量で実現したことになる。Nd-Tb-Cu 共晶合金浸透では $\mu_0 H_c=2.35$ T, $\mu_0 M_r=1.44$ T という極めて優れた磁石特性を達成できることを示した。重希土類合金拡散法は焼結磁石の保磁力増大法として工業応用されているが、この手法は 900°C 程度の高い処理温度を必要とするために結晶粒径がサブミクロンサイズの熱間加工磁石に適応することができない。本研究で実証した Nd-Dy-Al, Nd-Tb-Cu 共晶合金拡散法は、熱間加工磁石が再結晶を起こさない低温で適応可能な重希土類拡散法として技術的価値が高い。第 5 章ではより大きな熱間加工磁石への共晶合金拡散法の適応結果を報告している。第 8 章は本論文のまとめ、今後の課題と展望が述べられている。

審 査 の 要 旨

〔批評〕

本論文は、熱間加工 Nd-Fe-B 系磁石の結晶粒界に沿ってさまざまな共晶合金を浸透させ、磁石内部の微細組織を最適化することによって、Dy フリー・省 Dy で従来の焼結磁石よりも高保磁力・高磁化を持つ高性能磁石開発の方法を示した。さらに走査電子顕微鏡・収差補正走査型透過電子顕微鏡により微細組織をマルチスケールで解析することにより、結晶粒界に生成する Nd リッチ相の構造と化学組成を解析し、保磁力ならびに残留磁化改善の理由を解明した。その結果、Dy フリーでこれまでに報告されていた熱間加工磁石の最高水準の特性を実現することに成功、さらに

高保磁力が必要な場合に共晶合金源に微量の Dy を含有することで、効果的に粒界相に Dy を分配させ、従来の焼結磁石よりも微量の Dy を使うことで、高保磁力・高磁化を達成できることを示した。これらの結果は磁石メーカーにおけるハイブリッド・電気自動車用高性能磁石開発の基礎的知見を与えるものとして、工学的価値が高いだけでなく、精緻な微細構造解析に基づいた保磁力メカニズムに関する系統的な研究は学術的価値も高い。

〔最終試験結果〕

平成 30 年 2 月 14 日、数理物質科学研究科学学位論文審査委員会において審査委員の全員出席のもと、著者に論文について説明を求め、関連事項につき質疑応答を行った。その結果、審査委員全員によって、合格と判定された。

〔結論〕

上記の論文審査ならびに最終試験の結果に基づき、著者は博士(工学)の学位を受けるに十分な資格を有するものと認める。